



Docket No. 43521-1200

IN THE UNITED STATES PATENT AND TRADEMARK OFFICE

In re Application of:

Tetsushi Yamaguchi et al.

Serial No.: 10/718,068

Filed: November 20, 2003

For: PARTICLE SIZE DISTRIBUTION  
ANALYZER

Patent Examiner: Not yet assigned

Group Art Unit: 2877

March 11, 2004

Irvine, California 92614

**TRANSMITTAL OF PRIORITY DOCUMENT**

Commissioner for Patents  
P.O. Box 1450  
Alexandria, VA 22313-1450

Dear Sir:

Enclosed is the priority document Japan 2002-338627 for the above-identified patent application in accordance with 35 USC §119.

Please acknowledge receipt of this priority document.

I hereby certify that this correspondence is being deposited with the U.S. Postal Service as first class mail in an envelope addressed to Commissioner for Patents, PO Box 1450, Alexandria, VA 22313-1450, on March 11, 2004

by: James Lee

Signature

Date of Signature: March 11, 2004

Very truly yours,

SNELL & WILMER LLP

Joseph W. Price, Reg. No. 25,124  
1900 Main Street, Suite 1200  
Irvine, CA 92614  
Tel: (949) 253-4920  
Fax: (949) 955-2507

日 本 国 特 許 庁  
JAPAN PATENT OFFICE

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office.

出 願 年 月 日                      2 0 0 2 年 1 1 月 2 1 日  
Date of Application:

出 願 番 号                      特 願 2 0 0 2 - 3 3 8 6 2 7  
Application Number:  
[ST. 10/C]:                      [ J P 2 0 0 2 - 3 3 8 6 2 7 ]

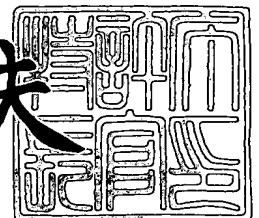
出      願      人                      株式会社堀場製作所  
Applicant(s):



2 0 0 4 年    2 月 2 6 日

特許庁長官  
Commissioner,  
Japan Patent Office

今 井 康 夫



【書類名】 特許願

【整理番号】 165-095

【提出日】 平成14年11月21日

【あて先】 特許庁長官 太田信一郎殿

【国際特許分類】 G01N 15/02

【発明者】

【住所又は居所】 京都府京都市南区吉祥院宮の東町 2 番地  
株式会社堀場製作所内

【氏名】 山口哲司

【発明者】

【住所又は居所】 京都府京都市南区吉祥院宮の東町 2 番地  
株式会社堀場製作所内

【氏名】 梅澤誠

【特許出願人】

【識別番号】 000155023

【氏名又は名称】 株式会社堀場製作所

【代理人】

【識別番号】 100121441

【弁理士】

【氏名又は名称】 西村竜平

【手数料の表示】

【予納台帳番号】 192752

【納付金額】 21,000円

【提出物件の目録】

【物件名】 明細書 1

【物件名】 図面 1

【物件名】 要約書 1

【プルーフの要否】 要

**【書類名】 明細書****【発明の名称】 粒子径分布測定装置****【特許請求の範囲】**

**【請求項 1】** 測定対象粒子を含む試料を収容する透明セルと、前記セルの外側から前記試料にレーザ光を照射するレーザ光照射部と、前記レーザ光を照射された測定対象粒子から発される散乱光の強度を測定する散乱光強度測定部と、前記測定対象粒子のブラウン運動によって前記散乱光強度に生じる揺らぎに基づいて粒子径分布を算出する算出部とを備えたものであって、セルの傷やセルと外気との屈折率差等に起因して生じるノイズ散乱光の前記散乱光測定部への入射量を低減すべく、前記セルの外壁面又は／及び内壁面における少なくとも前記レーザ光が照射される領域を、そのレーザ光の光軸に対して所定角度傾斜させていることを特徴とする粒子径分布測定装置。

**【請求項 2】** 試料に対するレーザ光の入射方向とは逆向きに進む後方散乱光の強度を前記散乱光強度測定部で測定するようにしている請求項 1 記載の粒子径分布測定装置。

**【発明の詳細な説明】****【0001】****【発明の属する技術分野】**

本発明は、動的散乱式粒子径分布測定装置に関するものである。

**【0002】****【従来の技術】**

従来、特許文献 1 に示すように、小径の粒子径を測定する装置として、いわゆる動的散乱式粒子径分布測定装置と称されるものが知られている。この種の装置における粒子径分布の測定原理は以下の通りである。すなわち、所定濃度の測定対象粒子を含む試料中においては、それら測定対象粒子は試料溶媒中で不規則に運動（ブラウン運動）しており、相対的に大きい粒子はゆっくり動き、小さい粒子は速く動く傾向にある。そこに一定周波数のレーザ光を照射すると、そのレーザ光が前記測定対象粒子にあたって散乱するが、測定対象粒子は前述の通り個々にブラウン運動しているため、各粒子からの散乱光の周波数がドップラーシフト

により各粒子の移動速度に起因してわずかに入射レーザ光の周波数からずれることとなる。

#### 【0003】

したがってその周波数のずれを観測すれば、統計的に粒子径分布を求めることができる。具体的には、全粒子からの周波数のずれの総和が散乱光強度の「揺らぎ」として観測されるため、その散乱光強度の揺らぎから専用のアルゴリズムを用いて前記「揺らぎ」から粒子径分布を算出するようにしている。

#### 【特許文献1】

特開 2002-221479 公報

#### 【0004】

#### 【発明が解決しようとする課題】

しかしながらかかる散乱は、測定対象粒子においてのみならず、前記試料を収容するセルの傷、セルと外気との界面、あるいはセルと試料との界面等においても生じている。そして前記傷や界面は、自然界に存在する  $1/f$  揺らぎや、セルの微小揺れ、あるいは界面張力波の存在等により揺らいでおり、その揺らぎに起因してこれらからの散乱光にも周波数ずれが生じているため、これら傷等から散乱する散乱光がノイズの原因となって測定に悪影響を及ぼす。

#### 【0005】

これに対し、比較的濃度の高い試料で測定を行う場合には、測定対象粒子からの散乱光が大多数を占めるため、前記傷等から散乱されたノイズ散乱光による信号は、測定対象粒子からの光揺らぎ信号の中に埋もれて無視できるレベルのものとなる。ところが、測定対象粒子の濃度が比較的低い試料、あるいは微小粒子試料における場合には前記ノイズ散乱光による信号が無視できないレベルとなって、測定精度や S/N が低下するという不具合が生じ、有効な測定が行えない場合もある。

#### 【0006】

これを解決すべく従来の動的散乱式粒子径分布測定装置では、セルの外壁面と外部との界面で屈折率差を原因として生じるノイズ散乱光を低減すべく、セルを当該セルと近似する屈折率を有した液中に浸した液浸タイプのものが開発されて

いる。

#### 【0007】

しかしながら、上述した装置では確かにセルの外壁面における界面で発生するノイズ散乱光はある程度除去できるものの、セルの壁体に存在する傷やゆがみに起因して生じるノイズ散乱光や、セルの内壁面と試料との界面で発生するノイズ散乱を有効に除去することができない。特に最近使い捨てのセルではプラスチック等の樹脂製のものを用いる場合が多く、このようなセルにおいては傷やゆがみ、あるいは内部に筋状に不均質が現れた脈理といわれるものが生じやすく、ノイズ散乱光発生の原因となる。

#### 【0008】

さらに前記液浸タイプのもものでは、セルを浸すための液体に有機溶媒を使うことが多くその取り扱いが困難であるうえ、構造も複雑なものになりやすい。加えてその溶媒中に混入したゴミや汚れが逆にノイズ散乱光の原因となることもある。

#### 【0009】

そこで本発明は、この種の動的散乱式粒子径分布測定装置においてノイズの原因となる前記ノイズ散乱光を極めて簡単な構造で低減することをその主たる課題としたものである。

#### 【0010】

##### 【課題を解決するための手段】

すなわち本発明に係る粒子径分布測定装置は、測定対象粒子を含む試料を収容する透明セルと、前記セルの外側から前記試料にレーザ光を照射するレーザ光照射部と、前記レーザ光を照射された測定対象粒子から発される散乱光の強度を測定する散乱光強度測定部と、前記測定対象粒子のブラウン運動によって前記散乱光強度に生じる揺らぎに基づいて粒子径分布を算出する算出部とを備えたものであって、セルの傷やセル、外気間の屈折率差等に起因して生じるノイズ散乱光の前記散乱光測定部への入射量を低減すべく、前記セルの外壁面又は／及び内壁面における少なくともレーザ光が照射される領域を、そのレーザ光の光軸に対して所定角度傾斜させていることを特徴とするものである。

**【0011】**

ここで「傾斜」とは、壁面とレーザ光軸とのなす角度が90度を除く角度であることをいう。

**【0012】**

このようなものであれば、例えば既存のセルの取付角度を変えるとといった極めて簡単な構成で、セルの表面にある微小な凹凸（傷）や内部にある脈理、あるいはセル外壁面と外気との界面、セル内壁面と試料と界面でそれらの屈折率差によって生じるノイズ散乱光の測定に対する影響を大きく低減することができる。これらノイズ散乱光の強度分布方向は、レーザ光のセル外壁面又はセル内壁面に対する入射角度に強く依存するところ、セル外壁面又は／及びセル内壁面を傾斜させることにより、ノイズ散乱光を測定すべき散乱光の光路と異なった方向に進行させることができるからである。

**【0013】**

また、セルの壁面で反射する反射光も確実にカットできるため、反射光によるノイズ成分をも大きく減少させることができる。

**【0014】**

そしてこのように、ノイズレベルを大きく低減できるため、例えば従来では測定できなかった、極めて低濃度試料でも有効な測定が可能となる。

**【0015】**

本発明を適用してその効果がより顕著となる具体的態様としては、試料に対するレーザ光の入射方向と逆向きに進む後方散乱光の強度を前記散乱光強度測定部で測定するようにしているものを挙げることができる。ここで「逆向きに進む後方散乱光」とは逆向きの方向成分を有した光を含む意味である。

**【0016】****【発明の実施の形態】**

以下に本発明の一実施形態について図面を参照して説明する。

本実施形態に係る粒子径分布測定装置1は、動的散乱式のもので、図1、図2に示すように、測定対象粒子Cを含む試料を収容する透明セル2と、この透明セル2を保持収容するセルユニット部3と、前記セル2の外側から前記試料に一定

周波数のレーザ光を照射するレーザ光照射部 4 と、前記レーザ光を照射された測定対象粒子 C から発される散乱光の強度を測定し強度信号として出力する散乱光強度測定部 5 と、前記強度信号を受け付ける強度信号受付部 6 と、前記強度信号受付部 6 で受け付けた強度信号に生じる揺らぎに基づいて粒子径分布を算出する算出部 7 とを備えてなる。

#### 【0017】

各部を説明する。

#### 【0018】

セル 2 は、例えば直方体状をなす等厚中空の透明ガラス製のもので、セルユニット部 3 内に設けた図示しないセルホルダに取り外し可能に保持させてある。このセル 2 に收容されている試料は、例えば水等の溶媒中に測定対象粒子 C を比較的低濃度で分散させたもの、あるいは高濃度であっても微小粒子が分散されたものである。なお、試料中の測定対象粒子 C は温度の変化によってそのブラウン運動が敏感に変化し、測定に影響を及ぼすおそれのあるところ、本実施形態では、セルユニット部 3 内の温度制御を行う温度制御機構（図示しない）を設けて測定中の試料温度を安定化させ、高精度な測定が行えるようにしてある。

#### 【0019】

レーザ光照射部 4 は、レーザ光の光源たる例えば半導体レーザ 4 1 と、この半導体レーザ 4 1 から射出されるレーザ光を試料に導く光路を形成する照射光案内機構 4 2 とを備えたものである。この照射光案内機構 4 2 は、前記半導体レーザ 4 1 から射出される拡散レーザ光を所定径の平行レーザ光にするコリメートレンズ 4 3 と、前記平行レーザ光を前記セル 2 の内壁面やや内側に設定した所定照射領域に集光させる集光レンズ 4 4 とを備えている。

#### 【0020】

散乱光強度測定部 5 は、所定波長帯域の光を受光し、その光の強度に応じた強さの電気信号である強度信号を出力する検出器（フォトディテクタ）5 1 と、前記測定対象粒子 C から発される散乱光を前記フォトディテクタ 5 1 に導く光路を形成する散乱光案内機構 5 2 とを備えたものである。

#### 【0021】



この散乱光案内機構 52 は、前記所定照射領域にある測定対象粒子 C から入射レーザ光の進行方向と逆向きに散乱する散乱光を当該入射レーザ光と途中まで同一光路で逆向きに進行させるもので、当該散乱光を前記平行レーザ光より大径の平行光とする平行化レンズ 53 と、平行化された散乱光のうちから多重散乱光等のノイズ要因となる光をカットするためのノイズ光カット部 54 と、このノイズ光カット部 54 からでた散乱光を前記フォトディテクタ 51 の受光面に集光照射する第 2 集光レンズ 55 とを備えている。前記平行化レンズ 53 は、前記集光レンズ 44 と共用しており、散乱光の光路が入射レーザ光の光路と途中まで合致するようにしてある。

#### 【0022】

しかして前記ノイズ光カット部 54 は、ピンホール PH を有した遮蔽板 541 の前後に一对の凸レンズ 542、543 を配してなるもので、平行化した前記散乱光を一方の凸レンズ 542 でピンホール PH に集光し、そのピンホール PH を抜けて再び拡がる散乱光を他方の凸レンズ 543 で再度平行化するものである。

#### 【0023】

本実施形態では、ノイズ光カット部 54 と第 2 集光レンズ 55 との間に反射ミラー 56 をさらに設けており、ノイズ光カット部 54 をでた散乱光が、前記反射ミラー 56 で反射され、前記第 2 集光レンズ 55 を介して前記フォトディテクタ 51 の受光面に照射されるようにしてある。なお、この反射ミラー 56 は前記平行レーザ光の光路上に設置されるため、その平行レーザ光の光量を変えことなくこれを通過させるべく中央部に略同径のレーザ貫通孔 LH が設けてある。

#### 【0024】

強度信号受付部 6 は、プリアンプ 61 および AD 変換器 62 を基本構成として備えるもので、アナログ信号として入力された前記強度信号を受け付け、デジタル信号として出力するものである。

#### 【0025】

算出部 7 は、前記強度信号受付部 6 から出力された強度信号に生じる揺らぎに基づいて粒子径分布を算出し、その結果をパソコン等の情報処理装置 8 を介してディスプレイやプリンタに所定の態様で出力するものである。なお、本実施形態

ではホモダイン検出法を用いており、前記測定対象粒子Cからの散乱光同士の干渉によって生じる揺らぎを利用するようにしているがヘテロダイン検出法でも適用可能なのはいうまでもない。また、この算出部7で用いられるアルゴリズムや構成の詳細内容に関しては本発明者が特開2000-171383等で明らかにしているため、ここでの説明は省略する。

#### 【0026】

しかして本実施形態では、前記セル2における少なくとも前記レーザ光が照射され通過する領域を、そのレーザ光の光軸に対して所定角度傾斜させている。具体的には、セル2におけるレーザ光が入射される正面壁21が、当該入射レーザ光の光軸に対して例えば45度の角度をなすように、セル2全体の取り付け角度を設定している。

#### 【0027】

このことにより、セル正面壁21をレーザ光の光軸に正対させる場合、すなわち正面壁21とレーザ光の光軸とのなす角度が90度である場合と比べ、セル2の表面にある微小な凹凸や内部にある脈理（傷）、あるいはセル外壁面21aと外気との界面、セル内壁面21bと試料との界面でそれらの屈折率差によって生じるノイズ散乱光を大きく（例えば1/100）に低減することができる。

#### 【0028】

これらノイズ散乱光の強度は、レーザ光のセル外壁面21a又はセル内壁面21bに対する入射角度に大きく依存しており、前記正対する場合にはレーザ光の入射方向と同一逆方向に強く散乱しノイズの大きな原因となるところ、図1、図2のように傾斜させれば、ノイズ散乱光の広がり角度を含む進行方向が、レーザ光の入射方向とは別の方向に向く、すなわち、測定すべき散乱光の検出光路とは異なる方向に向くこととなるためである。

#### 【0029】

また、セル壁面21a、21bで反射する反射光も確実にカットできるため、反射光によるノイズ成分をも大きく減少させることができる。

#### 【0030】

さらに本実施形態では前述したようにノイズ光カット部54を設けており、セ

ル内壁面 21b の近傍に設定した、レーザ光が集光される所定照射領域以外で散乱したノイズ散乱光や多重散乱光をカットできるため、それとの相乗効果によるノイズの低減作用も期待できる。

#### 【0031】

そしてその結果、従来では測定できなかった、極めて低濃度（例えば従来の 1/100）の試料に対しても有効な粒子径分布測定が可能となる。

#### 【0032】

なお本発明は種々の変形が可能である。

#### 【0033】

例えば前記実施形態では、セルの取付角度を既存のものから変更するようにしていたが、レーザ光の入射角度を既存のものから変更するようにしても構わない。また、セルの形状を図 3 に示すように三角柱状等にしてもよい。要はセルの外壁面又は／及び内壁面における少なくとも前記レーザ光が照射される領域と、そのレーザ光の光軸とが所定角度傾斜していればよい。

#### 【0034】

もちろん、セルの壁体は等厚のものに限らず、セルの内壁面又は外壁面のいずれか一方のみを、入射されるレーザ光の光軸に対して傾斜させておいても、所定のノイズカット効果を奏し得る。さらに、ノイズ光カット部は必ずしも必要なく、原理的にはこれを省略しても構わない。

#### 【0035】

その他本発明は、上記図示例に限られず、その趣旨を逸脱しない範囲で種々の変更が可能である。

#### 【0036】

##### 【発明の効果】

以上に詳述したように、本発明によれば、例えば既存のセルの取付角度を変えらるといった極めて簡単な構成で、セルの表面にある微小な凹凸（傷）や内部にある脈理、あるいはセル外壁面と外気との界面、セル内壁面と試料と界面でそれらの屈折率差によって生じるノイズ散乱光の、測定に対する影響を大きく低減することができる。これらノイズ散乱光の強度分布方向は、レーザ光のセル外壁面又

はセル内壁面に対する入射角度に強く依存するところ、セル外壁面又は／及びセル内壁面を傾斜させることにより、ノイズ散乱光を測定すべき散乱光の光路と異なった方向に進行させることができるからである。

そしてこのようにノイズレベルを大きく低減できるため、例えば従来では測定できなかった、極めて低濃度の試料、あるいは微小粒子の試料に対しても有効な粒子径分布測定が可能となる。

#### 【図面の簡単な説明】

##### 【図 1】

本発明の一実施形態における動的散乱式粒子径分布測定装置の全体模式図。

##### 【図 2】

図 1 における要部拡大図。

##### 【図 3】

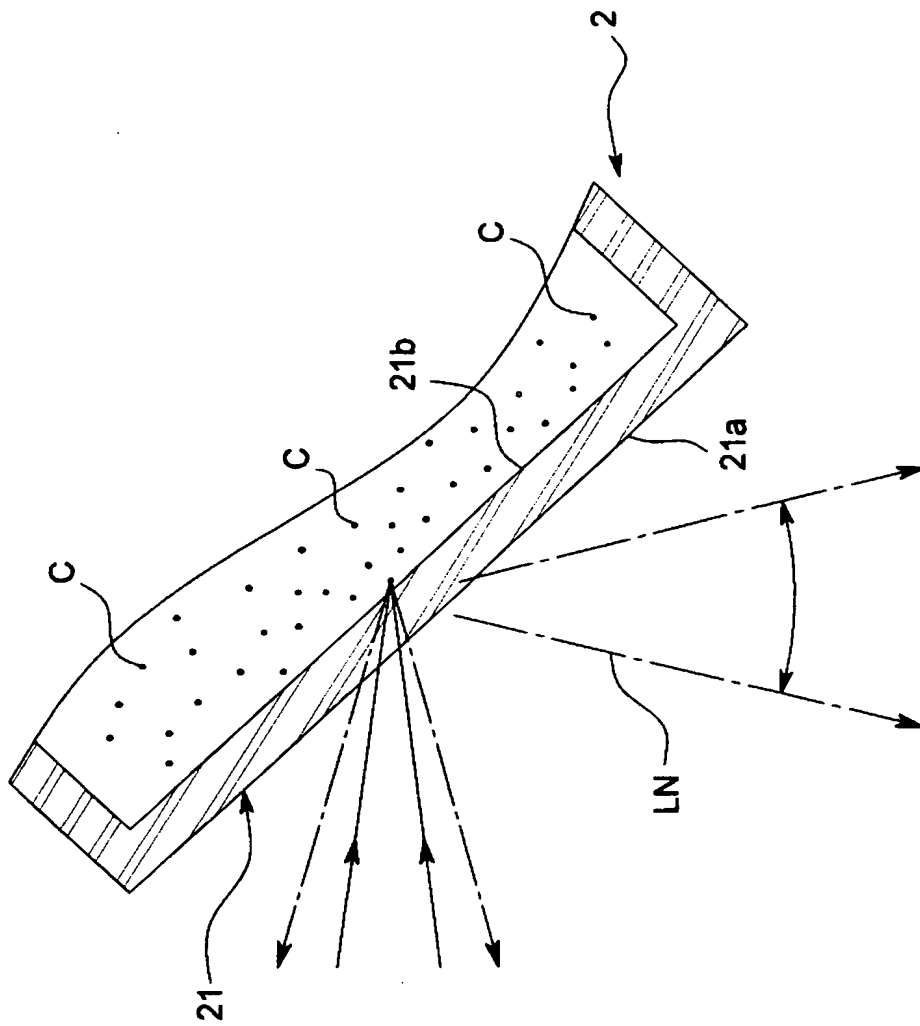
本発明の他の実施形態における動的散乱式粒子径分布測定装置の全体模式図。

#### 【符号の説明】

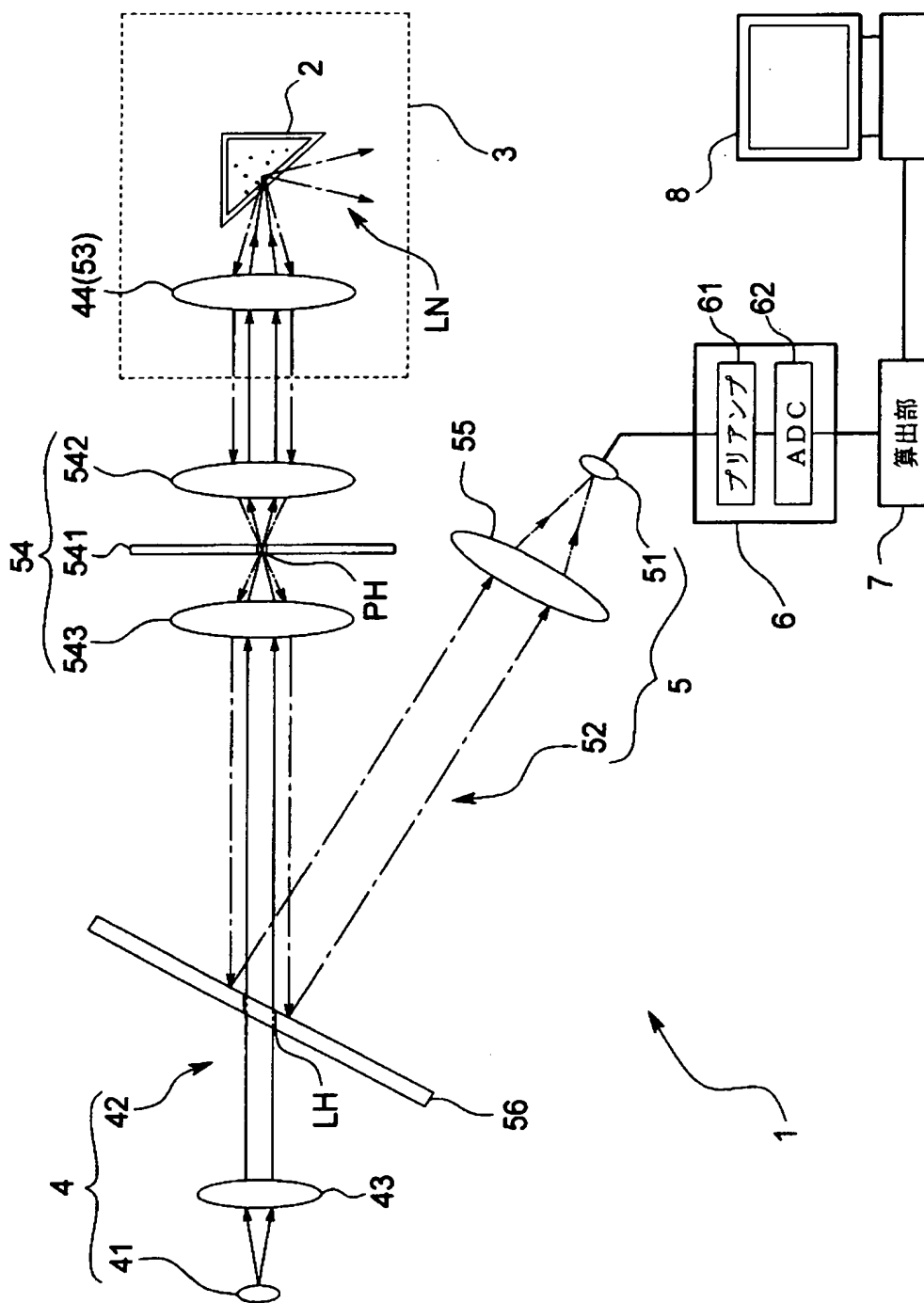
- 1 . . . 動的散乱式粒子径分布測定装置
- 2 . . . セル
- 2 1 a . . . 外壁面
- 2 1 b . . . 内壁面
- 4 . . . レーザ光照射部
- 5 . . . 散乱光強度測定部
- 7 . . . 算出部
- C . . . 測定対象粒子



【図 2】



【図 3】



**【書類名】 要約書****【要約】**

**【課題】** 動的散乱式粒子径分布測定装置において、ノイズの原因となるノイズ散乱光を極めて簡単な構造で低減する。

**【解決手段】** 測定対象粒子Cを含む試料を収容する透明セル2と、前記セル2の外側から前記試料にレーザ光を照射するレーザ光照射部4と、前記レーザ光を照射された測定対象粒子Cから発される散乱光の強度を測定する散乱光強度測定部5と、前記測定対象粒子Cのブラウン運動によって前記散乱光強度に生じる揺らぎに基づいて粒子径分布を算出する算出部7とを備えたものであって、セル2の傷やセル2と外気との屈折率差等に起因して生じるノイズ散乱光の前記散乱光測定部への入射量を低減すべく、前記セル外壁面21a又は／及び内壁面21bにおける少なくとも前記レーザ光が照射される領域を、そのレーザ光の光軸に対して所定角度傾斜させた。

**【選択図】** 図1



特願 2 0 0 2 - 3 3 8 6 2 7

出 願 人 履 歴 情 報

識別番号 [ 0 0 0 1 5 5 0 2 3 ]

1. 変更年月日 1 9 9 0 年 9 月 3 日

[変更理由] 新規登録

住 所 京都府京都市南区吉祥院宮の東町 2 番地

氏 名 株式会社堀場製作所